

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報 (A)

昭57-63311

⑫ Int. Cl.³
C 08 F 10/00
4/02
4/64

識別記号 106
厅内整理番号 7823-4J

⑬ 公開 昭和57年(1982)4月16日
発明の数 4
審査請求 未請求
(全 10 頁)

⑭ オレフィンの重合用の成分及び触媒

⑮ 特 願 昭56-126026

⑯ 出 願 昭56(1981)8月13日

優先権主張 ⑰ 1980年8月13日 ⑯ イタリア
(IT) ⑰ 24141A / 80

⑰ 発明者 サンドロ・パロディ
イタリー国ノヴァラ・オレツジ
ヨ・ヴィアデイネグリ 4

⑰ 発明者 ロベルト・ノツチ
イタリー国ノヴァラ・コルソ X
X III マルツオ 170

⑰ 発明者 ウムベルト・ジャシニーニ

イタリー国ミラノ・ヴィアシス
モンティ 53

⑰ 発明者 ピエール・カミロ・バルベ
イタリー国フェラーラ・ヴィア
バヴオーネ 3

⑰ 発明者 ウムベルト・スカタ
イタリー国フェラーラ・ヴィア
シバティスティ 31

⑰ 出願人 モンテジソン・ソチエタ・ベル
・アチオニ
イタリー国ミラノ・フォロボナ
バルテ 31

⑰ 代理人 弁理士 小田島平吉

明細書

1 [発明の名称]

オレフィンの重合用の成分及び触媒

2 [特許請求の範囲]

1 必須組体としての活性形の Mg ハロゲン化物、並びに Mg ハロゲン化合物上に担持されている Ti^{+4} -ハライド又は Ti^{+4} -ハロアルコレート及び下記の群の化合物から選択された電子供与体化合物：

1.1 オルト位に $C(OH)_2$ 基を有する芳香族ジカルボン酸のモノ及びジエステルであつて、その $C(OH)_2$ 基のヒドロカルビル基が3個未満の炭素原子を含み且つ炭素の少なくとも1個は炭素原子2個を含むモノ及びジエステル。

1.2 式 $R-COO-R'$ (ここで、ヒドロカルビル基 R は炭素数が3~20の飽和もしくは

不飽和の分枝鎖状の基又は炭素数が7~20のアリールアルキル基であるか、或は R はエステル基カルボニル基に直接もしくはメチレン基を介している炭素数が3~20のアリール基であり、そして、 R' は炭素数が3より少ないヒドロカルビル基である) の飽和及び不飽和カルボン酸のエステル。

からなり、アルファ-オレフィンの重合用触媒を形成するために Al -アルキル化合物及び1個以上の $Si-O-R$ 、 $Si-O-C(=O)-R$ 又は $Si-NR_2$ 化合(R はヒドロカルビル基である) を含有しているケイ素化合物と組み合わせて使用される固体成分。

2 疎 Mg ハロゲン化合物が Mg ジハライドである特許請求の範囲第1項記載の固体成分。

3 疎 Mg ハロゲン化合物が Mg ジクロライド又は Mg ジブロマイドであり、該 Ti^{+4} ハライドが

T_1 テトラハライドであり、そして電子供与体化合物がジエチルフタレート、メチル-及びエチル-ビバレート、メチル-及びエチル-メタクリレートである。特許請求の範囲第1項記載の固体成分。

4 下記成分：

- a) $Al - Al$ -アルキル化合物、
- b) 1個以上の $Si - OR$ 、 $Si - OCOR$ 又は $Si - NH_2$ 結合（ここでRはヒドロカルビル基である）を含有しているケイ素化合物、
- c) 特許請求の範囲第1項～第3項に記載されている如き固体成分。

の反応生成物からなる、アルファ-オレフィンの重合用触媒。

5. 該 $Al - Al$ -アルキル化合物が、 $Al -$ トリアルキル或は $Al -$ カルボニル基を介して、又は SO_4 、もしくは HSi_3 基を介して互に結合してい

候オレフィンとエチレンの混合物の重合方法。

9. 特許請求の範囲第8項記載の方法で得られたアルファ-オレフィンの重合体。

3 [発明の詳細を説明]

本発明は、 $CH_2 = CH$ オレフィン（ここでRは炭素数が1～4のアルキル基又はアリール基である）及び該オレフィンとエチレンの混合物の重合用触媒の形成に有用な新規な固体成分。並びに該成分から形成された触媒。更には重合方法に関するものである。

今までに知られているブレビレン及びそれより高級なオレフィンの重合用の担持されている高活性のそして高級に立体特異性の触媒は、電子供与体化合物（外部電子供与体）で部分的に錯体化されている $Al - Al$ -アルキル化合物を、活性形の $Mg -$ ハライド上に担持されている T_1 化合物及び電子供与体化合物（内部電子供与体）からなる固体

る2個以上の Al 原子を含有している $Al - Al$ -アルキル化合物である特許請求の範囲第4項記載の触媒。

6. 成分b)のケイ素化合物がフェニルトリ-アルコキシラン又はジフェニルジアルコキシラン又はアルキルジ-もしくはトリ-アルコキシランである。特許請求の範囲第4項もしくは第5項記載の触媒。

7. 成分c)が特許請求の範囲第2項もしくは第3項記載の固体成分である。特許請求の範囲第6項記載の触媒。

8. 重合方法を液相で不活性炭化水素溶媒の存在もしくは不存在下で又は気相で、特許請求の範囲第4項～第7項のいづれかに記載の触媒の存在下で、実油することを特徴とする、アルファ-オレフィン $CH_2 = CHR$ （ここでは炭素数が1～4のアルキル基又はアリール基である）及び

成分と反応させることにより得られる。

そのような触媒の例は英國特許1,559,194及びベルギー特許8,686,82中に記載されている。

$Si - O - C$ 結合を含有しているケイ素化合物からなる外部電子供与体も記されている〔特開昭54-94590号及び特開昭55-136203号〕。種々のそして多數の内部電子供与体の中には、メタクリル酸メチル及びビバリン酸エチルの如き化合物も挙げられている。しかしながら、

$Si - O - C$ 結合を含有しているケイ素化合物を外部電子供与体として使用する全ての先行技術の触媒においては、主として安息香酸のエステル及びそれらの誘導体が内部電子供与体として使用される。

活性及び立体特異性という面で表わされている上記の触媒の性能は、安息香酸エチル及び安息

香酸の同様なエステルを外部電子供与体として使用する触媒の性能と変わりない。今回、特別な構造を有するエステルを内部電子供与体として使用することにより、意外なことも、Si-O-C結合を含有しているケイ素化合物を外部電子供与体としてなる先行技術の担持触媒の活性及び立体特異性を増大できることが発見された。

本発明の触媒は、下記の成分の反応生成物からなつていて、

- a) Al-アルキル化合物。たとえばAl-トリアルキル或は酸素もしくは炭素原子を介して又はSi、もしくはSi₂基を介して互に結合している2個以上のAl原子を含有しているAl-アルキル化合物。
- b) 1個以上のSi-O-R、Si-OCOOR又はSi-NH₂結合（ここでRはヒドロカルビル基である）を含有しているケイ素化合物。

ン基を介して結合している炭素数が3～20のアリール基であり、そして、R'は炭素数が3より少いヒドロカルビル基であるといふ既知及び不飽和カルボン酸のエステル。

好適な代表的電子供与体化合物は下記のものである：ジエチルフタレート、メチルエチルフタレート、ジエチル-2,3-ナフタレンジカルボキシレート、メチル-及びエチル-ビバレート、メチル-及びエチル-メタクリレート。ポリカルボン酸のエステルはエステル基の他にエステル化されていないジウリルも含有することもできる。成分c)の製造においては、エステルを活性形のMgハロゲン化合物たとえば活性Mgジハライドもしくは予測め形成された該ジハライドの先駆体と接触させて製造することができる。更に、例えばアルコールとアリールハライドの間のエステル化により、又はポリカルボン酸の無水物もしくは

c) 必須担体としての活性形のMgハロゲン化合物好ましくはMgジハライド、並びにMgハロゲン化合物上に担持されているTi-ハライド又はTi-ハロアルコレート及び下記の群の化合物から選択された電子供与体化合物：

- 1) オルト位置にCOOH基を有する芳香族ジカルボン酸のモノ及びジエステルであつて、そのCOOH基のヒドロカルビル基が3個未満の炭素原子を含み且つ該基の少なくとも1個は炭素原子2個を含むモノ及びエステル。
- 2) 式R'COOK'（ここで、ヒドロカルビル基R'は既知、炭素数が3～20の飽和もしくは不飽和の分枝鎖状の基又は炭素数が7～20のアリールアルキル基であるか、又はR'はエステル系カルボニル基に直接もしくはメテレ

半エステルとアルコールの間のエステル化により、又はエステル交換による如き公知の反応によりエステルをその場で製造することができる。エステルは他の公知の内部電子供与体と併用することができる。成分c)の必須担体を形成する活性形のMgハロゲン化合物たとえば活性Mgジハライドは、成分c)のX線粉末スペクトル中で100/8の表面積を有するジハライドの粉末スペクトル中に現れる最も強い回折線の少なくとも30%の広がりを示すMgジハライドであるか、又は該強度ピークが最強線の面間距離に従してシフトしているハロにより直き窓わつているようなX線粉末スペクトルを示すMgジハライドであるか、又は100/8より大きい表面積を有するMgジハライドである。

Mgジハライドの表面積の測定は、成分c)を沸騰TiCl₄で2時間処理した後に行なわれる。

測定値を Mg ジハライドの表面積とする。 Mg ジハライドの非常に活性な形は、 $1\text{m}^2/\text{g}$ の表面積を有する対応するジハライドのスペクトル中に現われる最も強い回折線が相対的強度において減少しそして広がつてハロを形成するようなX線粉末スペクトルを示すものであるか、又は最も強い線が面間距離に関してシフトしたハロにより書き換わっているようなものである。一般に、上記の形の表面積は $30\sim40\text{m}^2/\text{g}$ より大きく、そして特には $100\sim300\text{m}^2/\text{g}$ である。

活性形は、上記の形から、不活性炭化水素溶液中での成分c)の熱処理によつても誘導でき、それはX線スペクトル中でハロの代りに弱い回折線を示すものである。

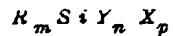
これらの形の弱い最強線は、いずれの場合にも、 $1\text{m}^2/\text{g}$ の表面積を有する Mg ジハライドの対応する線に関して少なくとも30%の広がりを示し

いても実施できる。化合物d)を加えそして成分c)自身と反応させることもできる。成分d)を、

成分c)上に担持されているハログン化Ti化合物(成分d)として使用されているアリールアルキル化合物に關して少くとも1のモル比で、そして 20 より少ない、好適には $0.05\sim0.3$ の間のモル比で反応させることができる。

成分d)においては、 Mg ジハライド及びそれに担持されているハログン化Ti化合物の間のモル比は $1\sim500$ の間であり、そして Mg ジハライド上に担持されている酸ハログン化Ti化合物及び電子供与体の間のモル比は $0.1\sim50$ の間である。

d)に示されているケイ素化合物には、一般式



[式中、Rは炭素数が $1\sim20$ のアルキル、アルケニル、アリール、アリールアルキル、シクロアルキル基であり。

ている。好適な Mg ジハライドは Mg ジクロライド及び Mg ジブロマイドである。ジハライドの含水量は一般に1重量%より少ない。

活性 Mg ジハライド上に担持されている Ti ハライド又は Ti ハロアルコレート及びエステルとは、粗体上に化学的もしくは物理的に固着され、成分a)を沸騰している $1,2$ -ジクロロエタンで2時間処理することによつても成分a)から抽出できないような上記の化合物を意味する。

成分a)、b)及びc)は互いにいずれの順序でも反応させられるが、好適には成分a)及びb)を予備混合し、その後成分c)と接触させる。

成分c)を成分a)及びb)又はc)と予備混合させることもできる。a)及びb)の予備混合は、普通、室温乃至重合温度の間の温度において行なうことができる。

c)及びd)の予備反応は比較的高い温度にお

Y は $-OR'$ 、 $-OCOR'$ 、 $-NR_1'$ であり。ここで R' はRとは同一であるか又は異なるつておりそしてRと同じ意味を有し。

X はハログンもしくは水素原子又は $-OCU$
 R'' 、 $-NR_2''$ 基であり、ここで R'' は R' と等しいか又は異なるつており、そして R' と同じ意味を有し。

m 、 n 及び p はそれぞれ、 m は $0\sim3$ 、 n は $1\sim4$ そして p は $0\sim1$ の数であり、そして $m+n+p$ は4に等しい】

の化合物が包含される。

使用できる他のケイ素化合物は、2個以上のケイ素原子が、碳素又は氫素原子を介して、互いに結合されているような化合物である。

これらの化合物の例は、ヘキサエトキシジシロキサン、対称性ジフェニルテトラエトキシジシロキサン

Ti 化合物及び電子供与体化合物と反応させる。
他の方法はドイツ特許出願公開 2 9 2 4 0 2 8、
米国特許 4 2 2 0 5 5 4 並びにイタリア特許出願
2 7 2 6 1 / 7 9 中に記されている。

他の方法は、Mg ジハライド、ハロゲン化 Ti
化合物電子供与体化合物を Mg ジハライドの活性
化まで一緒に粉碎し、そして粉碎された生成物を
ハロゲン化炭化水素、例えば 1, 2-ジクロエタン、
クロロベンゼン、塩化メチレン、ヘキサクロロエタン、
中に触媒処理することからなつていて、
上記の全ての方法では、最終生成物は、上記の
活性形で存在している Mg ジハライドを含有して
いる。

処理は 40 度乃至ハロゲン化炭化水素の沸点の
温度において、一般に 1~4 時間の範囲の時間に
わたって行なうことができる。

他の方法によると、低い OH 含有量（好適には
1 千部%以下）を有する SiO₂ 又は Al₂O₃ の
ような多孔性担体に、粒状の Mg ジハライドたと

えば Mg ジハライドの電子供与体（たとえば、アルコール、エーテルなど）浴液を含浸させ、次にこの担体を例えればドイツ特許出願公開 3 0 2 2 7
3 8 又はベルギー特許 8 6 8 6 8 2 中に記されている方法に従つて、溶解されている電子供与体化合物を含有している過剰の TiCl₄ で処理する。

上記の全ての方法では、最終生成物は、上記の活性形で存在している Mg ジハライドを含有して
いる。

活性形の Mg ジハライドを生成するため、又は
ジハライドが活性形で存在しているようを Ti_x 含
有 Mg ジハライド担持成分を生成するための他の
公知の方法の例としては下記の如き反応があげら
れる。

— クリニヤール試薬又は Mg R₂ 化合物（R は
ヒドロカルビル基である）又は該 Mg R₂ 化
合物と Al-トリアルキルとの錯体、及びハ

ロゲン化剤、例えば AlX₃ もしくは Al(R_m
X_n)₂ 化合物（X はハロゲンであり、R はヒド
ロカルビルであり、m + n = 3 である）、
SiCl₄ 又は HSiCl₃ の反応、

— クリニヤール試薬とシラノールもしくはボリ
シロキサン、H₂O 又はアルコールとの反応
及びその後のハロゲン化剤又は TiCl₄ との
反応、

— Mg とアルコール及びハロゲン化水素酸との
反応又は Mg とヒドロカルビルハライド及び
アルコールとの反応

— MgO と Cl₂ 又は AlCl₃ との反応、

— MgX₂ · nH₂O (X = ハロゲン) とハロゲ
ン化剤又は TiCl₄ との反応、

— Mg モノもしくはジアルコレート又は Mg
カルボキシレートとハロゲン化剤との反応。

Ti-ハライド又は Ti-ハロゲンアルコレ

トには特に、Ti-テトラハライド、Ti-トリ
ハライド及び Ti-トリハロゲンアルコレートが
包含される。好適な化合物は、TiCl₄、TiBr₄、
2, 6-ジメチルフェノキシトリクロロチタンである。

Ti-トリハライドは公知の方法により、例え
ば TiCl₄ を Al もしくは有機金属 Al 化合物
を用いて又は水素を用いて還元することにより、
得られる。

Ti-トリハライドの場合、触媒性能を改良す
る目的のためには、チタンの酸化（過分的であつ
てもよい）を、成分①の製造中又は後に行なう
ことが簡便である。この目的用には、ハロゲン、
ヨウ素ハライドを使用できる。

好適な触媒は、成分①が MgCl₂、TiCl₄、
及びマレイン酸、ビバリン酸及びフタル酸のエス
テルから得られ、そして成分②がフェニル-も

特開昭57-63311(7)

しくはエチル-トリエトキシシラン又はジフェニルジメトキシ-もしくはジフェニルジエトキシシランであるものである。

成分c)はAl-トリアルキル例えばAl-トリエチル又はAl-トリイソブチル、である。

成分c)は英國特許1,559,194、ベルギー特許868,682、ドイツ特許出願公開2,924,029、米国特許4,220,554、イタリア特許出願2,726,179又はドイツ特許出願公開3,002,738中に記されている方法に従つて製造できる。

成分c)の好適な製造方法は、 $MgCl_2$ 、 $TiCl_4$ 及びエステルと一緒に粉碎しそして粉碎された生成物をハロゲン化された炭化水素、例えば1,2-ジクロロエタン、で処理することも包含している。

本発明に従う触媒は、アルファ-オレフィンを

合体を得るためにも使用できる。

下記の実施例は単に説明目的のために示されているものであり、本発明の範囲を限定しようとするものではない。

実施例 1~2

固体触媒成分の調製：

ヨーロッパ特許出願公開公報第2,923,2号の実施例1に従つて、以下のようにして固体触媒成分を調製した。

(a) 粉碎

86.8 gの無水 $MgCl_2$ （1%より少ない水含有量）、表1に記載されたエステル及び1.9 gのビニル-トリエトキシシラン（VTS）（エステル/VTSのモル比=1.75及び $MgCl_2$ /（エステル+VTS）のモル比=4.5に相当する）を1000ccの全容量を有しそして84.85 gの直径が1.58 mmのイノツクス鋼（5% Cu ）

公知の方法により重合するために、すなわち重合を液相で不活性炭化水素溶媒の存在下もしくは不存在下で、又は気相で、又は例えば液相重合段階と気相段階を組み合わせることにより実施する際に、使用できる。一般に、温度は40°~160°の間、好適には60°~90°の間、であり、大気圧以上の圧力において行なうことができる。

分子量調節剤として、水素又は他の公知の型の調節剤が使用できる。

これらの触媒は、プロピレン、ブテン-1、ステレン、4-メチルベンゼンの重合において特に良好に使用できる。該触媒はまた、公知の方法に従つて、プロピレン及びエチレンを重合させて低濃度における比較的良好的耐衝撃性を有する改質ポリプロピレン（いわゆるプロピレン及びエチレンのブロック共重合体）を製造するため、又はプロピレンと少割合のエチレンの結晶性ランダム共重

合体を含む球を含有しているスープテクニック（SOUPTECHNIK）型のビブラトム（VIBRATUM）型の振動ミル中で共粉砕した。

粉碎は1/4の全容積当り120gに等しい充填効率を適用させて、約70°のミル内部温度においてそして60時間の粉碎時間にわたつて行なわれた。

粉碎された生成物のミルへの充填、引き続いての粉碎及び粉碎された生成物のミルからの除去は、乾燥器内空氣下で行なわれる。

(b) $TiCl_4$ を用いる処理

25gの共粉碎された生成物を依然として窒素ガス流下で500°Cの反応器中に移し、その中でそれらを810°Cの $TiCl_4$ と接触させた。

$TiCl_4$ を用いる処理は、100°Fまで搅拌しながら80°Cで2時間にわたつて行なわれ、

その後過剰の $TiCl_4$ 及びその中に溶解された生成物を 80℃でサイホンにより除去した。

この操作の次に 65℃のエタンを 1 回の洗浄毎に 200cc を用いて 5 回洗浄した。

どのようにして製造された触媒成分は、1/2/8 の表面積を有する $MgCl_2$ のスペクトル中に現われる最も強い回折線が相対的強度において減少しそして広がつてハロを生成するような X 線粉末スペクトルを示した。

プロピレンの重合：

60℃で維持された循環空気による圧力下に保持されている、磁気攪拌器及び熱電対を備えている 80 の全容積を有するステンレス鋼オートクレーブ中に、5 ミリモルのトリエチアルミニウム、フェニルトリエトキシシラン (PMS) 及び上記で調製した固体触媒成分を含有しているガス抜きされた無水ヨウ化水素中の懸濁液 1000cc を

触媒成分の表面積及びナトラリン中で 135℃において測定された固有粘度を表 1 に示す。

実施例 3

下記の如くして製造された固体触媒成分を用いて実施例 1 を複数回した。無水 $MgCl_2$ 、表 1 に挙げられているエステル、及びエステルに関する 1:1 のモル比の $TiCl_4$ を、1/8 の全容積を有しそして 3mm の直径が 1.6mm のステンレス鋼球を含有している N.V. テマ社、グラベンハーグ (オランダ) 製の VIBRATOM 型の振動ミル中で粉砕した。粉砕は 100g / 全容積 (空) & に特徴的な充填係数を用いて 25℃のミルの内部温度において、72 時間にわたって行なわれた。ミルの充填、粉砕、及びミルの排出は循環空気下で行なわれた。10g の共粉砕生成物を 100cc の 1,2-ジクロロエタンと 80℃において 2 時間接触させた。この時間後、1,2-ジクロロ

加え、その間にプロピレンも供給した。オートクレーブを開じ、その後水素を 0.2 気圧までの圧力で加え、温度を 70℃にあげ、そして同時にプロピレンを 7 気圧の全圧となるまで加えた。重合中、単位体を連続的に供給することにより圧力を一定に保つた。4 時間後、重合体スラリーを急速に冷却しそしてガス抜きすることにより重合を停止させた。重合体を沪過により粗粒から分離し、そして熱い循環液中で 70℃において乾燥した。次に沪液中に溶解されている量の重合体を単離し、重量測定し、そしてアイソタクチック指数 (I.I.) の計算のために沸騰しているヨウ化水素中に可溶性である重合体の重量と合計した。触媒成分の使用量並びに該成分中の Ti 含有量、トリエチアルミニウムに関するフェニルエトキシシランのモル比、加えられた触媒成分に関する重合体の収率、アイソタクチック指数 (I.I.)、固体

エタンを 80℃において沪過により除去し、そして残っている固体生成物を、沪液から無水イオンが消えるまで、室温においてヨウ化水素で陳述し洗浄し、次にヘブタン懸濁液中に保つた。このようにして製造された触媒成分は、1/2/8 の表面積を有する $MgCl_2$ のスペクトル中に現われる最も強い回折線が相対的強度において減少しそして広がつてハロを生成するような X 線粉末スペクトルを示した。エステル、固体触媒成分の特徴及び重合試験の結果を表 1 に示す。

実施例 4

実施例 1 を複数回したが、イタリア特許出願 26,908A/78 (特開昭55-29591号) の実施例 1 と同様な方法で製造した球状粒子形の固体付加物 $MgCl_2 \cdot 3C_2H_5OH$ を $TiCl_4$ - モノエチルフタレート付加物の $TiCl_4$ 懸濁液に、8 の Hg / モノエチルフタレートモル比及び 1/2 の

特開昭57-63311(9)

$TiCl_4 / C_2H_5OH$ モル比を用いて、ゆつくりと加えた。次に全体を100℃に加熱し、この温度に2時間保ち、その後100℃で戻した。生成した固体生成物を120℃で2時間わたつて110℃の $TiCl_4$ で処理した。この時間後に、 $TiCl_4$ を伊地により除去し、固体を次に90℃から室温に降下する温度において、塩素イオンが伊地から消えるまで、 n -ヘブタンで洗浄し、そして次にヘブタン溶液中に保つた。このようにして生成された触媒活性は、実施例1の触媒成分のそれと同じX線スペクトルを示した。エステル、固体触媒成分の特徴及び重合試験の結果を表1に示す。

比較例 1 及び 2

実施例1において、ジエチルフタレートの代わりに19.3%のエチルベンゾエートを用いるほかは同様にして固体触媒成分を調製した。X線粉末

スペクトルは実施例1の触媒成分のそれと同様であつた。得られた固体触媒成分を用いて、実施例1と同様の方法でプロピレンの重合を行なつた。

実施例 3

実施例4において、モノエチルフタレートの代りにエチルベンゾエートを用いるほかは同様にして固体触媒成分を調製した。その触媒成分のX線スペクトルは実施例1～2のそれと同様であつた。得られた固体触媒成分を用いて実施例4と同様にしてプロピレンの重合を行なつた。固体生成物の特徴及び重合試験の結果を表1に示す。

表 1

実施例 番号	固体触媒成分 エステル	固体触媒成分		重合				
		$MgCl_2$ モル/モル		固体成分の I^+ 含有量 重量%	$Al(C_2H_5)_3$ モル/モル	触媒 モル	収率 g重合体 g触媒成分	I.I. 初期粘度 dS/g
		PBS	モル/モル					
1	ジエチルフタレート	1.4	2.3	2.0	5.0	7.800	9.33	1.4
2	エチルメタクリレート	7	2.0	1.0	4.7	7.000	9.07	1.3
3	エチルベンゾイルアセテート	7	2.2	1.0	4.3	4.900	9.54	1.2
4	モノエチルフタレート	6	2.8	2.0	2.6	6.000	9.69	1.3
比較例 1)	エチルベンゾエート	7	2.0	1.0	4.6	6.000	9.06	1.4
比較例 2	エチルベンゾエート	7	2.0	6	4.7	4.000	9.27	1.6
比較例 3	エチルベンゾエート		3.6	3	4.5	4.600	9.4	1.5

手 続 補 正 書

昭和 56 年 10 月 23 日

特許庁技官 島 田 春 南 殿

1. 事件の表示

昭和 56 年特許第 126026 号

2. 発明の名称

オレフィンの高圧用の成分及び触媒

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 イタリー・ミラノ・フォロボナバルド 31

名 称 モンテジソン・ソチエタ・ペル・アチオニ
(氏名)

4. 代 理 人 〒 107

住所 東京都港区赤坂 1 丁目 9 番 15 号
日本自動車会館



氏 名 (6078) 弁理士 小 田 島 平 吉

住 所

氏 名 (自署)

5. 補正命令の日付 昭和 56 年 10 月 13 日 (発送日)

6. 補正の対象

明細書の“発明の詳細な説明”の欄

7. 補正の内容

別紙のとおり。

特許庁

手 続 補 正 書

昭和 56 年 11 月 13 日

特許庁技官 島 田 春 南 殿

1. 事件の表示

昭和 56 年特許第 126026 号

2. 発明の名称

オレフィンの高圧用の成分及び触媒

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 イタリー・ミラノ・フォロボナバルド 31

名 称 モンテジソン・ソチエタ・ペル・アチオニ
(氏名)

4. 代 理 人 〒 107

住所 東京都港区赤坂 1 丁目 9 番 15 号
日本自動車会館



氏 名 (6078) 弁理士 小 田 島 平 吉

住 所

氏 名 (自署)

5. 補正命令の日付 昭和 56 年 11 月 13 日 (発送日)

6. 補正の対象

明細書の“発明の詳細な説明”の欄

7. 補正の内容

別紙のとおり。

特許庁
56.11.13

特開昭 57-63311(10)

(1) 明細書第 19 頁末行に、「液状の Mg ジハイドride」とある前に、「液状の Mg ヘロゲン化合物たとえば」と加入する。

(2) 明細書第 20 頁 5 ~ 6 行に、「溶解されている……含有している」とあるを、「電子供与体の存在下に」と訂正する。

(3) 明細書第 27 頁 3 行に「エタン」とあるを、「ヘキサン」と訂正する。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.